

#5



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

ATTORNEY DOCKET NO. 040302/0250

Applicant: Hiroaki KANEKO et al.

Title: METHANOL REFORMING CATALYST

Appl. No.: 09/735,913

Filing Date: 12/14/2000

Examiner: Unassigned

Art Unit: 1745

**CLAIM FOR CONVENTION PRIORITY**

Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications filed in the following foreign country is hereby requested, and the right of priority provided in 35 U.S.C. § 119 is hereby claimed.

In support of this claim, filed herewith are certified copies of said original foreign applications:

Japanese Patent Application No. 11-356633 filed December 15, 1999 and  
Japanese Patent Application No. 2000-368626 filed December 4, 2000.

Respectfully submitted,

Date APR 20 2001

Richard L. Schwaab  
Attorney for Applicant  
Registration No. 25,479

FOLEY & LARDNER  
Washington Harbour  
3000 K Street, N.W., Suite 500  
Washington, D.C. 20007-5109  
Telephone: (202) 672-5414  
Facsimile: (202) 672-5399

Kaneko et al.  
09/735,913



日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年12月15日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第356633号

出 願 人

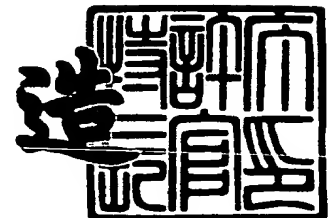
Applicant (s):

日産自動車株式会社

2000年11月 6日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3090145

【書類名】 特許願

【整理番号】 NM99-00369

【提出日】 平成11年12月15日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 3/02  
H01M 8/06

【発明の名称】 メタノール改質装置及びメタノール改質方法

【請求項の数】 9

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社  
社内

【氏名】 金子 浩昭

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社  
社内

【氏名】 羽賀 史浩

【特許出願人】

【識別番号】 000003997

【氏名又は名称】 日産自動車株式会社

【代表者】 ▲塙▼ 義一

【代理人】

【識別番号】 100102141

【弁理士】

【氏名又は名称】 的場 基憲

【電話番号】 03-3357-5155

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 061067

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9810101

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 メタノール改質装置及びメタノール改質方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 メタノールを酸素及び水蒸気の存在下に改質して、水素を含有する改質ガスを生成するメタノール改質装置であって、

メタノール供給手段と、酸素供給手段と、水供給手段と、これらの供給手段からメタノール、酸素及び水蒸気を供給され上記改質反応を行う改質部と、この改質部に配置され上記改質反応を促進するメタノール改質用触媒と、を備え、

上記メタノール改質用触媒が、Pd-Zn-Ce系組成物、Pd-Zn-Zr系組成物及びPd-Zn-Ce-Zr系組成物から成る群より選ばれた少なくとも 1 種の触媒成分を含有することを特徴とするメタノール改質装置。

【請求項 2】 上記Pd-Zn-Ce系組成物又はPd-Zn-Zr系組成物が、Ce酸化物又はZr酸化物にPd-Zn合金を担持して成ることを特徴とする請求項 1 記載のメタノール改質装置。

【請求項 3】 上記Pd-Zn-Ce-Zr系組成物が、Ce-Zr複合酸化物にPd-Zn合金を担持して成ることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載のメタノール改質装置。

【請求項 4】 上記メタノール改質用触媒が、PdとZnを重量比でPd:Zn=1:20~2:1の割合で含有することを特徴とする請求項 1~3 のいずれか 1 つの項に記載のメタノール改質装置。

【請求項 5】 請求項 1~4 のいずれか 1 つの項に記載のメタノール改質装置を用いるメタノール改質方法であって、

メタノールに酸素及び水蒸気を混合し、この混合ガスを上記改質部で上記メタノール改質用触媒の存在下に改質し、上記改質ガスを生成することを特徴とするメタノール改質方法。

【請求項 6】 メタノールを酸素及び水蒸気の存在下に改質して、水素を含有する改質ガスを生成する改質反応を促進するメタノール改質用触媒であって、

Ce酸化物又はZr酸化物にPd-Zn合金を担持して成ることを特徴とするメタノール改質用触媒。

【請求項 7】 Pd と Zn を重量比で Pd : Zn = 1 : 20 ~ 2 : 1 の割合で含有することを特徴とする請求項 6 記載のメタノール改質用触媒。

【請求項 8】 メタノールを酸素及び水蒸気の存在下に改質して、水素を含有する改質ガスを生成する改質反応を促進するメタノール改質用触媒であって、Ce と Zr の複合酸化物に Pd - Zn 合金を担持して成ることを特徴とするメタノール改質用触媒。

【請求項 9】 Pd と Zn を重量比で Pd : Zn = 1 : 20 ~ 2 : 1 の割合で含有することを特徴とする請求項 8 記載のメタノール改質用触媒。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

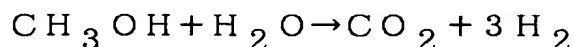
本発明は、メタノール改質装置及びメタノール改質方法に係り、更に詳細には、メタノールを酸素及び水蒸気と反応させて、水素を含有する改質ガスを生成する改質装置、改質方法及びこれらに用いる改質用触媒に関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池は、燃料の有する化学エネルギーを電気エネルギーに直接変換する装置であり、高いエネルギー効率が実現可能である。燃料電池の中でも、固体高分子型燃料電池、リン酸型燃料電池及び溶融炭酸塩電解質型燃料電池などでは、その電解質の性質から、水素以外にも二酸化炭素を含んだ燃料ガス（改質ガス）を使用することが可能である。このため、かかる燃料電池を備える燃料電池システムには改質器が設けられており、この改質器において燃料（含水素燃料）の改質を行い水素を含む改質ガスを生成している。

例えば、含水素燃料の一例であるメタノールを水蒸気改質して水素を生成する反応は、次式



で示される。なお、この反応は吸熱反応であるため、従来は、改質器にバーナやヒータを設けて加熱を行い、上記改質反応に必要な熱量を供給していた。

【0003】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、改質反応に必要な熱量を供給するために上述したような加熱用のバーナを設ける構成とする場合には、改質器にバーナを併設したり、このバーナに燃焼のための燃料や空気等を供給するための配管を行う必要があるため、システム構造の複雑化を招き、装置全体が大型化するという課題があった。

## 【0004】

また、メタノールから水素を効率よく製造する触媒としては、銅を主成分とする触媒が知られている。しかしながら、これらの銅系触媒は、低温活性や選択性等には優れているものの耐熱性に問題があり、特に、高温での反応（反応温度300℃程度以上）下では活性及び選択性の低下が著しく、比較的高温下での長時間使用は困難である。これに加えて、酸素が存在する雰囲気下では、活性種である金属Cuが酸化されてシンタリングが進行し、活性低下を引き起こす等の課題を有している。

## 【0005】

本発明は、このような従来技術の有する課題に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、バーナ等の改質反応維持・開始用の加熱器の設置を省略でき、エネルギー変換効率に優れ、簡易な構成で小型化が容易なメタノール改質装置及びメタノール改質方法を提供することにある。

また、本発明の他の目的は、改質反応の一つである部分酸化反応のような高温且つ酸素を介在させる雰囲気等の中でも、安定性良くその高活性を維持する高活性・高選択性のメタノール改質用触媒を提供することにある。

## 【0006】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意検討を重ねた結果、水蒸気改質反応とほぼ同時に又はこれに先立って発熱反応である部分酸化反応を誘起し、この際、特定のPd-Zn系触媒を用いることにより、上記目的が達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

## 【0007】

即ち、本発明のメタノール改質装置は、メタノールを酸素及び水蒸気の存在下

に改質して、水素を含有する改質ガスを生成するメタノール改質装置であって、  
メタノール供給手段と、酸素供給手段と、水供給手段と、これらの供給手段からメタノール、酸素及び水蒸気を供給され上記改質反応を行う改質部と、この改質部に配置され上記改質反応を促進するメタノール改質用触媒と、を備え、

上記メタノール改質用触媒が、 $\text{Pd}-\text{Zn}-\text{Ce}$ 系組成物、 $\text{Pd}-\text{Zn}-\text{Zr}$ 系組成物及び $\text{Pd}-\text{Zn}-\text{Ce}-\text{Zr}$ 系組成物から成る群より選ばれた少なくとも1種の触媒成分を含有することを特徴とする。

#### 【0008】

また、本発明のメタノール改質装置の好適形態は、上記 $\text{Pd}-\text{Zn}-\text{Ce}$ 系組成物又は $\text{Pd}-\text{Zn}-\text{Zr}$ 系組成物が、 $\text{Ce}$ 酸化物又は $\text{Zr}$ 酸化物に $\text{Pd}-\text{Zn}$ 合金を担持して成ることを特徴とし、更に、本発明のメタノール改質装置の他の好適形態は、上記 $\text{Pd}-\text{Zn}-\text{Ce}-\text{Zr}$ 系組成物が、 $\text{Ce}-\text{Zr}$ 複合酸化物に $\text{Pd}-\text{Zn}$ 合金を担持して成ることを特徴とする。

なお、この場合、上記メタノール改質用触媒が、 $\text{Pd}$ と $\text{Zn}$ を重量比で $\text{Pd}:\text{Zn}=1:20\sim 2:1$ の割合で含有することが望ましい。

#### 【0009】

また、本発明のメタノール改質方法は、上述の如きメタノール改質装置を用いるメタノール改質方法であって、

メタノールに酸素及び水蒸気を混合し、この混合ガスを上記改質部で上記メタノール改質用触媒の存在下に改質し、上記改質ガスを生成することを特徴とする。

#### 【0010】

更に、本発明のメタノール改質用触媒は、メタノールを酸素及び水蒸気の存在下に改質して、水素を含有する改質ガスを生成する改質反応を促進するメタノール改質用触媒であって、

$\text{Ce}$ 酸化物又は $\text{Zr}$ 酸化物に $\text{Pd}-\text{Zn}$ 合金を担持して成ることを特徴とする。

#### 【0011】

また、本発明の他のメタノール改質用触媒は、メタノールを酸素及び水蒸気の



存在下に改質して、水素を含有する改質ガスを生成する改質反応を促進するメタノール改質用触媒であって、

CeとZrの複合酸化物にPd-Zn合金を担持して成ることを特徴とする。

【0012】

【作用】

本発明においては、含水素燃料の一例であるメタノールを改質して水素を含有する改質ガスを生成するに当たり、メタノール（場合によってはメタノールと水蒸気の混合ガス）に酸素を供給して、吸熱反応である水蒸気改質に先立ち又はほぼ同時に、発熱反応である酸化反応（部分酸化反応）を誘起することにした。

従って、かかる部分酸化反応によって放出される熱量を利用して吸熱反応であるメタノールの水蒸気反応を行うことができ、従来、メタノールの水蒸気改質反応を起こすために外部から加えていた熱量を削減することが可能になり、ヒータ等の加熱器も省略可能になる。

【0013】

また、本発明のメタノール改質用触媒は、Pd-Zn-Ce系組成物、Pd-Zn-Zr系組成物及びPd-Zn-Ce-Zr系組成物などを含有し、メタノールの改質に際し、メタノール、酸素及び水蒸気と接触して上記部分酸化反応及び水蒸気改質反応を促進するが、かかる部分酸化反応のような高温且つ酸素が介在した雰囲気等の中でも安定性良くその高活性を維持することが可能であり、加えて、高温で使えるので、反応速度が速くなり、改質部をコンパクトにできる。

よって、改質反応の効率を向上することができるとともに触媒の高温失活につき過度の注意を払う必要がなく、このため、上記改質反応が行われる改質部の形状や構造を詳細に検討して改質部内部の均熱化を図る必要性を低減できる。

【0014】

【発明の実施の形態】

以下、本発明のメタノール改質装置及び改質方法について詳細に説明する。

上述の如く、本発明のメタノール改質装置は、メタノール供給手段と、酸素供給手段と、水供給手段と、改質部と、この改質部に配置された特定のメタノール改質用触媒とを備える。

図 1 に、本発明のメタノール改質装置を用いた燃料電池システムの一例を示す。同図において、メタノール改質装置は、メタノール供給手段 10 と、酸素供給手段 20 と、水供給手段 30 と、改質器 40 とを備え、この改質器 40 には、図示しないメタノール改質用触媒が設置されている。

#### 【0015】

ここで、メタノール供給手段、酸素供給手段及び水供給手段としては、改質部にそれぞれメタノール、酸素及び水蒸気を供給できれば十分であり、各種容器やポンプを例示できる。

また、改質部との連結は配管等の適当な供給路で行えばよく、かかる配管の途中には、流量計、圧力計及び温度計などの各種センサや、ポンプ等の圧送手段を設置することができ、メタノール等の各原料の供給を制御することができる。

なお、本発明においては、メタノールの部分酸化反応を水蒸気改質反応よりも先行させるか又はほぼ同時に行うので、メタノール供給路と酸素供給路とを改質部よりも上流側で合流させてもよい。

#### 【0016】

一方、改質部も、供給されたメタノール、酸素及び水蒸気が主として部分酸化反応及び水蒸気改質反応を行えば特に限定されるものではなく、ある程度の高温や圧力に耐え得るような反応容器であればよい。

また、後述するメタノール改質用触媒を充填できればよいので、形状や構造等についても特殊な態様のものは必ずしも必要ではない。

#### 【0017】

次に、本発明のメタノール改質用触媒について説明する。

上述の如く、このメタノール改質用触媒は、パラジウム－亜鉛－セリウム（Pd－Zn－Ce）系組成物、パラジウム－亜鉛－ジルコニウム（Pd－Zn－Zr）系組成物又はパラジウム－亜鉛－セリウム－ジルコニウム（Pd－Zn－Ce－Zr）系組成物、及びこれらの任意の混合成分を触媒成分として含有する。

また、このメタノール改質用触媒には、Pd と Zn が重量比で  $Pd : Zn = 1 : 20 \sim 2 : 1$  の割合で含まれることが好ましい。Pt がこの範囲で規定される量より少ないと活性が低下し、多いと CO 排出量が増加し、好ましくない。

## 【0018】

このメタノール改質用触媒は、上記触媒成分以外にも他の成分を含有してもよく、例えば、反応表面積を拡大すべく、アルミナやシリカ等の高比表面積基材上に上記触媒成分を担持して用いてもよい。

## 【0019】

なお、本発明において、上述したPd-Zn-Ce又はPd-Zn-Zr系組成物としては、Ce又はZr酸化物にPd-Zn合金を担持したものが好ましく、Pd-Zn-Ce-Zr系組成物としては、Ce-Zrの複合酸化物上にPd-Zn合金を担持したものが好ましい。

このように、Ce酸化物、Zr酸化物又はCe-Zr複合酸化物上にPd-Zn合金を形成・担持すれば、メタノールの改質反応において、貴金属触媒（Pd担持アルミナ触媒等）上で起こるメタノールの分解反応が抑制され、選択性の向上が図れる。更に、PdとZnを合金化し、これをCe酸化物、Zr酸化物又はCe-Zr複合酸化物上に担持しているので、酸素が介在し比較的高温（代表的には400～500℃）の条件下においても、シンタリングが抑制され、耐熱性及び耐久性が改善される。

## 【0020】

なお、このメタノール改質用触媒の形状は、上述した改質装置の改質部に配置可能であれば特に限定されるものではなく、粒状やペレット状でよく、更には、セラミック又は金属箔製の一体構造型担体（モノリス担体等）に被覆してもよい。

典型的には、Pd-Zn-Ce系組成物、Pd-Zn-Zr系組成物及びPd-Zn-Ce-Zr系組成物を、アルミナ又はシリカゾルと混合粉碎してスラリーを得、このスラリーをセラミック又は金属製モノリス担体上に塗布し、焼成することにより、性能の安定したメタノール改質用触媒が得られる。

## 【0021】

次に、上記メタノール改質用触媒の製造方法につき説明する。

この改質用触媒は、Pd及びZnの硝酸塩を所定の割合で混合し、得られた混合溶液をCe若しくはZrの酸化物又はCe-Zrの複合酸化物に含浸した後、

乾燥、焼成して得られる。

#### 【0022】

具体的には、Pd、Zn金属の硝酸塩を所定の割合で秤量後、純水で溶解して得られた混合溶液に、Ce若しくはZrの酸化物又はCe-Zrの複合酸化物を添加して十分に攪拌混合する。その後、150℃で乾燥後、500℃で焼成して触媒粉末を得る。

次いで、得られた触媒粉末を10重量%以下のアルミナ又はシリカを含む硝酸酸性ゾルと遊星ボールミルを用いて粉碎混合しスラリーを得る。なお、この際にアルミナ、シリカの含有量を10重量%以下とするのは、10重量%を超えると、触媒粉末成分量が相対的に低下するので好ましくないためである。

しかる後、得られたスラリーを一体型担体に塗布した後、空气中400℃で焼成することにより、性能の安定したメタノール改質用触媒が得られる。

#### 【0023】

##### 【実施例】

以下、本発明を実施例及び比較例によって更に詳細に説明するが、本発明はこれによって限定されるものではない。

#### 【0024】

##### （実施例1）

Pd：2モル、Zn：2モルになるよう各元素の硝酸塩を混合した。即ち、硝酸パラジウム溶液[Pd(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>溶液、Pd濃度%]188.7g、硝酸亜鉛[Zn(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>O]139.8gを計量し、純水と混合し、十分に攪拌して混合溶液を得た。

次に、Ce-Zr酸化物500gに上述の混合溶液を含浸した後、150℃で乾燥し、500℃で焼成して触媒粉末を得た。

得られた触媒粉末100gと、8重量%硝酸酸性アルミナゾル（13gのベーマイトアルミナと10重量%硝酸水溶液87gの混合溶液）100gとを遊星ボールミルを用いて2時間粉碎混合して触媒微粉末スラリーを得た。

得られたスラリーをセラミック製モノリス担体（400セル、0.119cc）に、触媒粉末重量として200g/Lになるように塗布し、150℃で10分

乾燥した後、空气中400℃で焼成し、コート層重量200g/L-担体を得た。更に、このコート層重量200g/L-担体を水素気流中500℃で1時間還元し、本例のメタノール改質用触媒1を得た。触媒組成を表1に示す。

## 【0025】

(実施例2～8)

実施例1と同様の操作を繰り返し、触媒2(実施例2)～触媒8(実施例8)を調製した(表1参照)。

## 【0026】

(比較例1)

硝酸パラジウム溶液[Pd(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>溶液、Pd濃度%]188.7gを計量し、純水と混合して十分に攪拌し、パラジウム水溶液を得た。Ce-Zr酸化物500gに上述のパラジウム水溶液を含浸した後、150℃で乾燥後、500℃で焼成し、5重量%Pd担持触媒粉末を得た。

得られた5重量%Pd担持触媒粉末100gと、8重量%硝酸酸性アルミナゾル(13gのペーマイトアルミナと10wt%硝酸水溶液87gの混合溶液)100gとを遊星ボールミルを用いて2時間粉碎混合してPd担持触媒微粉末スラリーを得た。

得られたスラリーをセラミック製モノリス担体(400セル、0.119cc)に、5重量%Pd担持触媒粉末重量として200g/Lになるように塗布し、150℃で10分乾燥後、空气中400℃で焼成し、コート層重量200g/L-担体を得た。更に、このコート層重量200g/L-担体を水素気流中500℃で1時間還元し、本例のメタノール改質用触媒9を得た。

## 【0027】

(比較例2)

市販のCu-ZnOメタノール改質用触媒粉末100gと、8重量%硝酸酸性アルミナゾル(13gのペーマイトアルミナと10wt%硝酸水溶液87gの混合溶液)100gとを遊星ボールミルを用いて2時間粉碎混合してCu-ZnO触媒微粉末スラリーを得た。

得られたスラリーをセラミック製モノリス担体(400セル、0.119cc

）に、Cu-ZnO触媒粉末重量として200 g/Lになるように塗布し、150℃で10分乾燥後、空气中400℃で焼成し、コート層重量200 g/L-担体を得た。コート層重量200 g/L-担体を水素気流中500℃で1時間還元し、本例のメタノール改質用触媒10を得た。

## 【0028】

（比較例3）

硝酸パラジウム溶液[Pd(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>溶液、Pd濃度%]188.7gを計量し、純水と混合して十分に攪拌し、パラジウム水溶液を得た。酸化亜鉛(ZnO)粉末500gに上述のパラジウム水溶液を含浸した後、150℃で乾燥し、500℃で焼成して、5重量%Pd担持触媒粉末を得た。

得られた5重量%Pd担持触媒粉末100gと、8重量%硝酸酸性アルミナゾル（13gのペーマイトアルミナと10wt%硝酸水溶液87gの混合溶液）100gとを遊星ボールミルを用いて2時間粉碎混合してPd担持触媒微粉末スラリーを得た。

得られたスラリーをセラミック製モノリス担体（400セル、0.119cc）に、5重量%Pd担持触媒粉末重量として200 g/Lになるように塗布し、150℃で10分乾燥後、空气中400℃で焼成し、コート層重量200 g/L-担体を得た。コート層重量200 g/L-担体を水素気流中500℃で1時間還元し、本例のメタノール改質用触媒11を得た。

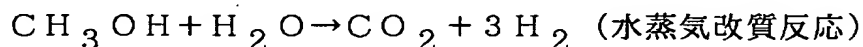
## 【0029】

〔試験例〕

実施例1～8及び比較例1～3で得られた改質用触媒について、650℃×8時間の空气中での熱処理を行った後、メタノールを用いて水蒸気改質+部分酸化反応による改質率を測定した。

メタノールの改質反応は以下の反応に従って行われる。

なお、添加する水蒸気量は理論量、酸素量は理論値の1/3とした。



改質率は、残留するメタノール量をガスクロマトグラフを用い算出した。

改質温度は触媒入口温度で 400℃とし、LHSV（触媒容積に対する供給液体量の単位時間当たりの値）＝ $4\text{ hr}^{-1}$ とした。得られた結果を表 1 に併記する。

【0030】

【表 1】

	触媒	触媒組成	Pd : Zn (モル比)	改質率 (%)
実施例 1	触媒 1	5wt%Pd-3.06wt%Zn/ (68%CeO <sub>2</sub> -32%ZrO <sub>2</sub> )	1 : 1	98
実施例 2	触媒 2	5wt%Pd-6.12wt%Zn/ (68%CeO <sub>2</sub> -32%ZrO <sub>2</sub> )	1 : 2	99.8
実施例 3	触媒 3	5wt%Pd-30.6wt%Zn/ (68%CeO <sub>2</sub> -32%ZrO <sub>2</sub> )	1 : 10	99.3
実施例 4	触媒 4	5wt%Pd-1.03wt%Zn/ (68%CeO <sub>2</sub> -32%ZrO <sub>2</sub> )	2 : 1	95
実施例 6	触媒 6	5wt%Pd-6.12wt%Zn/CeO <sub>2</sub>	1 : 2	98.8
実施例 7	触媒 7	5wt%Pd-6.12wt%Zn/ZrO <sub>2</sub>	1 : 2	99.7
実施例 8	触媒 8	5wt%Pd-6.12wt%Zn/ (20%CeO <sub>2</sub> -80%ZrO <sub>2</sub> )	1 : 2	99.5
比較例 1	触媒 9	5wt%Pd / (68%CeO <sub>2</sub> -32%ZrO <sub>2</sub> )		92
比較例 2	触媒 10	Cu-ZnO		85
比較例 3	触媒 11	5wt%Pd / ZnO	1 : 20	91

【0031】

以上、本発明を好適実施例により詳細に説明したが、本発明はこれら実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨の範囲内において種々の変形が可能である。

例えば、本発明の改質装置と、COの選択酸化や水性ガスシフト反応などを行うCO変成装置とを連結すれば、得られる改質ガス中のCO濃度を低減することも可能である。更には、本発明の改質装置は、燃料電池、特に固体高分子型燃料電池と組み合わせることにより、簡易な構成で小型の発電システムを得ることができ、かかる発電システムは電気自動車の動力源として有望である。

【0032】

【発明の効果】

以上説明してきたように、本発明によれば、水蒸気改質反応とほぼ同時に又はこれに先立って発熱反応である部分酸化反応を誘起し、この際、特定のPd-Zn系触媒を用いることとしたため、バーナ等の改質反応維持・開始用の加熱器の設置を省略でき、エネルギー変換効率に優れ、簡易な構成で小型化が容易なメタノール改質装置及びメタノール改質方法を提供することができる。

また、改質反応の一つである部分酸化反応のような高温且つ酸素を介在させる雰囲気等の中でも、安定性良くその高活性を維持する高活性・高選択性のメタノール改質用触媒が提供される。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明のメタノール改質装置を用いた燃料電池システムの一例を示すシステム構成図である。

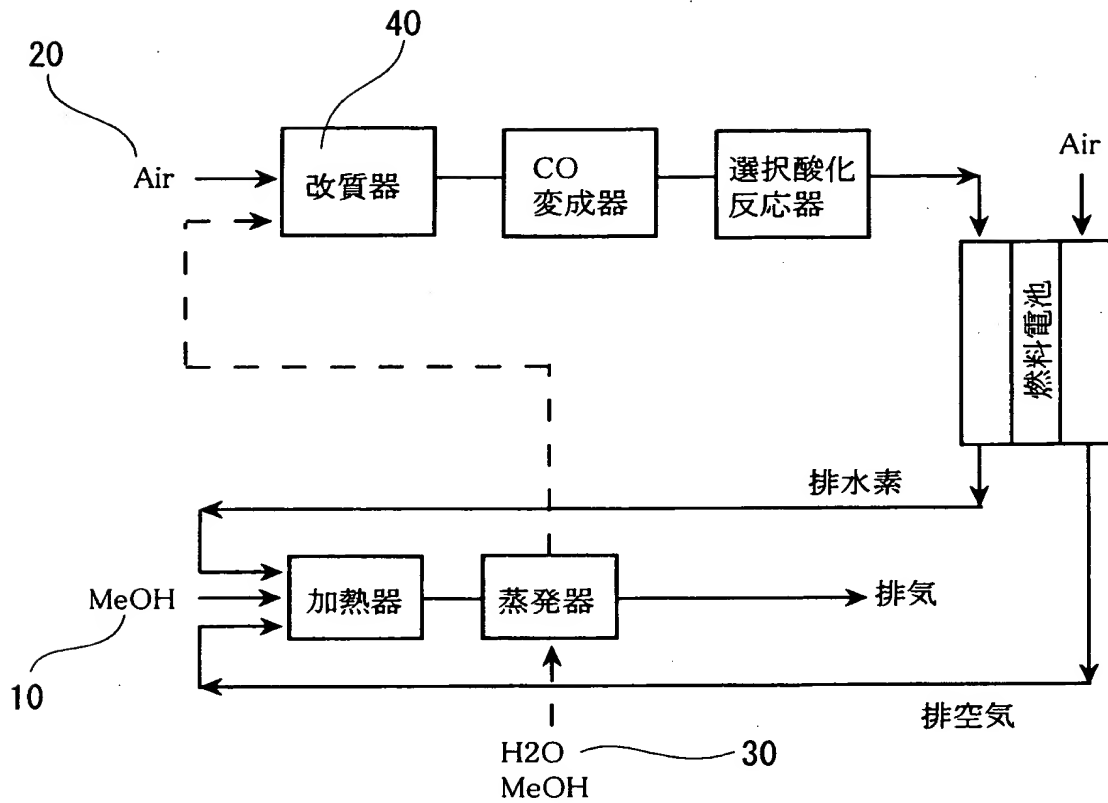
【符号の説明】

- 1 0      メタノール供給手段
- 2 0      酸素供給手段
- 3 0      水供給手段
- 4 0      改質器



【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 改質反応維持・開始用の加熱器の設置を省略でき、エネルギー変換効率に優れ、簡易な構成で小型化が容易なメタノール改質装置及びメタノール改質方法を提供すること。

【解決手段】 メタノールを酸素と水蒸気の存在下に改質して水素を含有する改質ガスを生成するメタノール改質装置である。メタノール供給手段と、酸素供給手段と、水供給手段と、これらからメタノール、酸素及び水蒸気を供給され改質反応を行う改質部と、改質部に配置され改質反応を促進するメタノール改質用触媒と、を備える。メタノール改質用触媒は、Pd-Zn-Ce、Pd-Zn-Zr及びPd-Zn-Ce-Zr系組成物などの触媒成分を含有する。

上述のメタノール改質装置を用いるメタノール改質方法である。メタノールに酸素と水蒸気を混合し、この混合ガスをメタノール改質用触媒の存在下に改質して改質ガスを生成する。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003997]

1. 変更年月日	1990年 8月31日
[変更理由]	新規登録
住 所	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地
氏 名	日産自動車株式会社